

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problems Mailbox.**

PAT-NO: JP362081470A
DOCUMENT-IDENTIFIER: JP 62081470 A
TITLE: HOT-MELT ADHESIVE COMPOSITION
PUBN-DATE: April 14, 1987

INVENTOR-INFORMATION:
NAME
OKUYAMA, TOSHIO
HIROSE, SHUNRYO

ASSIGNEE-INFORMATION:
NAME TOAGOSEI CHEM IND CO LTD COUNTRY N/A

APPL-NO: JP60221865
APPL-DATE: October 7, 1985

INT-CL (IPC): C09J003/14

US-CL-CURRENT: 524/271

ABSTRACT:

PURPOSE: To obtain the titled composition having excellent adhesion durability and heat stability, by mixing a specified copolymer, a tackifier, and a crystalline PP.

CONSTITUTION: 5∼70wt% copolymer (A) which contains 35wt% or less styrene units and is obtained by the hydrogenation of a styrene-isoprene-styrene block copolymer or a styrene-butadiene-styrene block copolymer, is mixed with 10∼70wt% tackifier (B) (e.g., a terpene phenol resin)

having a softening point of 60∼150°C, 10∼75wt% crystalline PP (C) (e.g., a powdery PP prepared by polymerizing propylene or by decomposing an isotactic PP) having a number-average molecular weight of 20,000 or less, and if necessary, another polymer (e.g., an ethylene-propylene copolymer), a wax (e.g. a paraffin wax), an extender oil (e.g., a liquid rosin), an aggregate (e.g., talc), etc.

COPYRIGHT: (C)1987,JPO&Japio

⑩ 日本国特許庁 (JP)

⑪ 特許出願公開

⑫ 公開特許公報 (A) 昭62-81470

⑬ Int.CI.*

C 09 J 3/14

識別記号

JDJ

庁内整理番号

7102-4J

⑭ 公開 昭和62年(1987)4月14日

審査請求 未請求 発明の数 I (全8頁)

⑮ 発明の名称 ホットメルト接着剤組成物

⑯ 特願 昭60-221865

⑰ 出願 昭60(1985)10月7日

⑱ 発明者 奥山 登志夫 名古屋市港区船見町1-1 東亞合成化学工業株式会社研究所内

⑲ 発明者 広瀬 俊良 名古屋市港区船見町1-1 東亞合成化学工業株式会社研究所内

⑳ 出願人 東亞合成化学工業株式会社 東京都港区西新橋1丁目14番1号

明細書

1. 発明の名称

ホットメルト接着剤組成物

2. 特許請求の範囲

1. 下記3成分を含有することを特徴とするホットメルト接着剤組成物。

(A) スチレン-イソブレン-スチレンブロック共重合体又はスチレン-ブタジエン-スチレンブロック共重合体を水素膨脹して得られる共重合体

(B) 粘着性付与剤

(C) 故平均分子量20000以下の結晶性ポリブロビレン

3. 発明の詳細な説明

① 発明の目的

「産業上の利用分野」

本発明は種々の分野の産業で広く使用されているポリオレフィン系樹脂、金属などに対し、優れた接着力を有し、かつ接着耐熱性、耐熱クリープ性などの接着耐久性及び加熱耐熱時の熱

安定性に優れたホットメルト接着剤組成物に関するもので、電気部品の接着をはじめ、各種の産業分野で広く利用できるものである。

「従来の技術」

従来テレピオーグの固定をはじめとする電気部品の接着、工業用フィルターのシール接着、自動車用部品の接着などにおいて、しかも主として金属材料の接着に耐熱性の優れたホットメルト接着剤としてダイマー酸系のポリアミド接着剤が広く使用されている。

しかしながら、これらポリアミドは、溶融加熱時にアミド基に帰属する熱劣化があること、接着剤を干燥する必要があること、耐寒性が劣るなどの問題点を有している。さらに最近かかる用途に多用されたポリオレフィン系樹脂をはじめとするプラスチックに接着力を有しないという致命的な欠点も有してある。

又他のホットメルト接着剤としてエチレン-酢酸共重合体、エチレン-エチルアクリレート共重合体、丁タクティックポリプロピレン等を

特開昭62-81470 (2)

ベース樹脂とする接着剤も検討されているが、いずれも接着耐熱性、耐寒性、ポリオレフィン樹脂に対する接着性などの性能を十分に満足するものはない。

〔発明が解決しようとする問題〕

本発明は、従来のホットメルト接着剤の有している上記問題点を解決し金属はもちろん、難接着性物質といわれるポリプロピレン、ポリエチレンなどのポリオレフィン系樹脂をはじめとするプラスチックに対して優れた接着性、耐熱性、耐寒性を有し、かつホットメルト接着剤として溶融接着布装置による作業性、溶融加熱安定性に優れたホットメルト接着剤を提供するものである。

〔4〕発明の構成

〔問題を解決するための手段〕

本発明者等は上記問題点のない優れたホットメルト接着剤を与える組成物について試験検討を経て、特徴のある成分を含有する組成物がそれ等を満足することを見出し、本発明を構成した。

3

本発明で使用される共重合体は通常SBR系熱可塑性エラストマーと呼ばれているものであり、例えば市販品としてシェル化成社製「クレインG-1650」「クレインG-1652」「クレインG-1657」などがある。

本発明に用いる共重合体としては共重合体中におけるステレン単位が35重量%以下の共重合体が望ましい。

本発明の組成物中におけるかかる共重合体の配合割合は重量%で組成物中の5重量%～70重量%が望ましく、5重量%未満であるとポリオレフィン系樹脂等にポリプロピレンならびに金属に対する接着力が低下するようになり、70重量%を超えると、接着力が低下する恐れがあるほか、加熱溶融時の脱離性がそこなわれるようになるので避けることが望ましい。さらに望ましくは10重量%以上50重量%以下であり、その使用割合により、きわめて強靭性のある接着性の優れた組成物が得られる。

すなわち本発明は下記3成分を含有することを特徴とするホットメルト接着剤組成物に関するものである。

(A) スチレン-イソブレン-ステレンブロック共重合体又はステレン-ブタジエン-ステレンブロック共重合体を水素添加して得られる共重合体

(B) 粘着性付与剤

(C) 平均分子量20000以下の結晶性ポリプロピレン

かかる組成物から得られるホットメルト接着剤はポリオレフィン系樹脂等にポリプロピレンさらには金属に対し優れた接着耐熱性及び耐熱クリーブ性を有し、かつ溶融接着布装置による作業性、加熱溶融時の熱安定性に優し、優れた性能を有するものである。

(A) スチレン-イソブレン-ステレンブロック共重合体又はステレン-ブタジエン-ステレンブロック共重合体を水素添加して得られる共重合体

4

〔B〕粘着性付与剤

粘着性付与剤としてはロジン系のものとして天然ロジン、重合ロジン及びそれらの誘導体例えば、ベンタエリスリットエステルロジン、グリセリンエスアルロジンならびにそれらの水添樹脂などがあり、具体的には市販品としてガムロジン、ウッドロジン、エスチルガムA、エスチルガムB、ベンセルA、ベンセルC（荒川化学工業）、ベンタリンA、フォーラルAX、フィーラルH5、フォーラル105、ベンタリンC（以上樹脂ハーキュレス社）などがある。またテルペン系のものとしてポリテルペン系樹脂、テルペンエノール系樹脂及びそれらの水添樹脂があり、具体的には市販品としてピコライトB、ピコライトA（ピコ社製）、Y8レジン、Y8ポリスターT、クリアロン（安原油脂社）などがある。

さらには石油樹脂系のものとして脂肪族系石油樹脂、芳香族系石油樹脂、共重合系石油樹脂及び水添石油樹脂などがあり、具体的には市販

5

-518-

6

特開昭62-81470(3)

品として、エスコレック(東燃石油化学㈱)、ハイレック(三井石油化学㈱)、クイントン(日本ゼオン㈱)、クィンダック(グッドイヤー㈱)、スタック(ライヒホールド㈱)、トーホーベトロジン(東燃石油樹脂㈱)、日石オオポリマー(日本石油化学㈱)、ペトロジン、タックエース(三井石油化学㈱)、エスコレック(エッソ化学㈱)、トーホーハイレジン(東邦石油樹脂㈱)、スーパースタータック(ライヒホールド㈱)、アルコンドR&B(荒川化学工業㈱)、ビコペール(ビコ社㈱)などがある。さらにクマロシーラインデン樹脂、熱可塑性エノール樹脂等を使用することもできる。本発明においてはこれらの粘着性付与剤を用意により使いわけることができるが、本発明にとり好ましいのは水系樹脂である。これらの粘着性付与剤は接着材料に対する接着性を増大させるために用いられる。

本発明の組成物中におけるかかる粘着性付与剤の配合割合は重量比で10重量%以上70重量

%以下が最もしく、さらに最もしくは20重量%以上60重量%以下である。その比が10重量%未満であると接着材料に対する接着性が低下するようになり、逆に70重量%を超えると接着剤の凝集力が低下するようになり、接着力特に接着耐熱性も低下する恐れがある。又軟化点が60°C以上150°C以下の粘着性付与剤が本発明にとり好ましい。

① 数平均分子量20000以下の結晶性ポリプロピレン

数平均分子量20000以下の結晶性ポリプロピレンは、プロピレンを含有して、あるいはアイソタクティックポリプロピレンを分解して得られる粉末状のポリプロピレンなどであり、市販品として例えればビスコールR50P(数平均分子量15000、R&B軟化点152°C)、ビスコール550P(数平均分子量4000、R&B軟化点150°C)、ビスコール460P(数平均分子量3000、R&B軟化点145°C)、ビスコールTS-200(数平均分子量

7

3500、R&B軟化点145°C)(いずれも三洋化成㈱)などがある。

かかるポリプロピレンにより接着材料に対する接着性特に優れた接着耐熱性と加熱溶融時の流动性に優れたタックの少ない組成物が得られる。なお、その特性は分子量が1,000~5,000の結晶性ポリプロピレンを用いると、より一層顯著であるので本発明にとり、その様なポリプロピレンを用いるのが好ましい。

本発明の組成物中におけるかかるポリプロピレンの配合割合は重量比で10重量%以上75重量%が最もしくさらには20重量%以上60重量%以下が最もしく。重量比が10重量%未満であると、ポリオレフイン系樹脂特にポリプロピレン及び金属性に対する接着性が低下する恐れがあり、溶融時の流动性が不足するようになり、又75重量%を超えると同時に接着性及び接着耐熱性が不足するようになる。

本発明において上記結晶性ポリプロピレンの一部を、主にアイソタクティックポリプロ

8

レンの副生成物として分離される非晶性アタクティックポリプロピレン例えればビスタロン(R&B軟化点125°C~155°C千葉ファインケミカル㈱)ビスタックL(R&B軟化点50~60°C千葉ファインケミカル㈱)タック633(R&B軟化点140~160°C)などに置き換えることが可能である。

なお、その割合を結晶性ポリプロピレンの70重量%以上にすると、結晶性ポリプロピレンによる特性が失われる様になるので70重量%以上にするのは避ける必要がある。

なお、本発明の結晶性ポリプロピレンとして結晶性を損なわない範囲で他のモノマーが共重合されたポリプロピレンを用いることも可能である。

② その他の助剤

本発明の組成物は、前記の水系添加されたブロック共聚合体及び粘着性付与剤及びポリプロピレンの配合せからることにより加熱溶融時の相溶性に便れ、かつ前記の優れた接着特性を

特開昭62-81470(4)

有することができるのであり、水素添加されたブロック共重合体の代りに通常ホットメルト接着剤でベースポリマーとして使用される。例えばEVA、EBA、ケン化EVA、エチレン-プロピレン共重合体、ステレン-イソブレン-ステレン又はステレン-ブタジエン-ステレンブロック共重合体を使用する場合には、溶融時の相溶性が十分でなく、ホットメルト接着剤組成物として適さないが、勿論本発明の組成物に対し、その特徴を損なわない範囲内でそれらを添加することも可能である。又本発明の組成物に対し、ワックス例えば、パラフィンワックス、マイクロワックス、低分子量ポリエチレン、又は低分子量液状ゴム例えはポリブテン、ポリイソブレン、ポリイソブチレン、ポリブタジエン、又は石油油例えば、パラフィン系、ナフテン系、芳香族炭化水素系の石油系高沸留分及び、液状ロジン、液状テルペン、又は骨材例えは、タルク、シリカ、炭酸カルシウム、亜鉛華などを本発明の特徴を損なわない範囲内で添加すること

11

G 接着剤の製造方法

本発明の組成物による接着剤は、加熱型溶融搅拌器と称する溶解槽において、好ましくは窒素気流下前室150℃以上250℃以下の温度で搅拌羽根の回転により、各々の成分を同時に順次溶解する方法、ニーダーと称する臥状搅拌羽根により加熱下シューをかけて融合する方法、又押出機等を用いて单軸又は2軸のスクリューにより加熱下溶融融合する方法など通常ホットメルト接着剤の製造で用いられるいすれの方法においても製造が可能である。

「作用」

本発明の3成分を含有するホットメルト接着剤組成物は、3成分が共存することにより、接着剤が困難とされているポリオレフィン系樹脂等にポリプロピレンをはじめ、金属に対する接着耐熱性の優れた接着剤を与えるという作用を有するものでありしかもその接着剤は溶融塗布膜における作業性溶融時の加熱安定性に優れ、しかも接着後の樹脂タックが少ないため、接着

も可能である。さらに本発明の組成物に対し、軟化防止剤を好ましくは金属成物に対し3%の範囲内で添加しても良い。

かかる構成物において本発明のホットメルト接着剤組成物が得られるわけであるが溶融時の加工性を考慮すれば本発明の組成物の溶融粘度は10万cps/200℃を越えないことが好ましく、さらに好ましくは1000cps/200℃以上20000cps/200℃以下であり、又要求される接着耐熱性からみて、A&B軟化点が100℃以上160℃以下のものが好ましく、120℃以上160℃以下であるのがより好ましい。

かかる組成物はホットメルトアブリケーターと称する、溶融塗布装置に通した優れた接着剤となり得るものであるが、勿論本発明組成物から得られた接着剤はシート化したり、あらかじめ接着剤に塗布した後、改めて加熱接着する方法を適用することも可能である。

12

剤が露出する用途においても極めて有効に利用できるものであり、本発明の要するこの優れた作用は3成分を併用することによりはじめて達成されたものである。

「実施例及び比較例」

①評価方法

A&B軟化点……JIS-K-2207に準じて測定した。

溶融粘度……JAS-7-1980に準じて、190℃に加熱し、日製回転粘度計により測定した。

溶融安定性……ホットメルトアブリケーターノードソン型(ノードソン曲)で溶融190℃にて溶解し、5Hにたった状態内の分離の有無を確認した。

評価は○…全く分離の認められないもの、×…分離により使用不可のものとして行なった。

同時に加熱による接着の有無を確認し、○…初期と変化のないもの、×…初期と著しく変化のあるものとして評価した。

13

-520-

14

特開昭62-81470(5)

接着强度…接着剤組成物を前記のアブリケーターに投入し、24時間経過した時点で10mm角のポリプロピレンフィルム(300μ)にひも状(0.5g/mm)の接着剤で塗布し、直后にもう一枚のポリプロピレンフィルム(300μ)を手で接着した。接着片を25%巾に裁断しT型ハクリ強度を測定した。測定温度は室温(23℃)、60℃中で行なった。

引張剪断強度は同様にして10mm巾に接着剤を重ね25mm巾に裁断し強度測定を行なった。全く同様にしてアルミニウムシート(100μ)について接着サンプルを作成し、強度測定を行なった。T型ハクリ強度は200mm/分の引張速度で測定し、得られた強度をN/25mmの単位で表示した。引張剪断強度は10mm/分の引張速度で測定し、得られた強度をN/10mmラップ×25mm巾の単位で表示した。

クリープ温度…JIS-K-6844接着剤の軟化温度測定方法に準じ、前記の引張剪断強度に使用したものと同様の接着サンプルを用い、

10mmラップ×25mm巾の接着部当り、200gの荷重をかけ、恒温器に保持し、38℃に15分保持してから5分間に2℃の割合で温度を上昇し、接着部が融解した温度を表示した。

実施例1～4、比較例1～5

200℃に加熱した10g接着剤でビスコール660P(三井化成㈱)1.12g、ビスッタッシュ(千葉ファインケミカル㈱)1.12g、抗酸化剤のIrgafos-1010(高分子ヒンダード多価フェノール;チバガイギー㈱)4.0gを混練機付し、溶解後、粘着性付与剤のYSポリスターT-145(テルベンフェノール樹脂;軟化点:45℃;安原油脂㈱)1.12gを徐々に添加、被膜200℃に上昇後、共重合体のクレイトンG-1457(0.6g)を添加2時間攪拌し、溶解融解後剤より抜出し、接着剤を得た。前記の評価方法で評価した結果を実施例1とし表に示す。

同様にして、実施例1の粘着性付与剤をクリントンG-100(C₅系石油樹脂、軟化点

15

95℃;日本ゼオン㈱)、アルコンP-115(水溶石油樹脂、軟化点115℃;荒川化学㈱)に変更したものを実施例2・3、実施例1の成分比を換えたものを実施例4、共重合体、粘着性付与剤としてのYSポリスターT-145及び結晶性ポリプロピレンとしてのビスコール660Pより得られた接着剤を実施例5とし同様に表に示す。

比較例として実施例1に対し、共重合体を使用しないもの、共重合体の代りにカリフレックスTR-1107(ステレンイソブレンアスチレン共重合体;シエル化学㈱)、EV-420(EVA;三井ポリケミカル㈱)A-704(PEA;三井ポリケミカル㈱)を使用した例及びポリプロピレンとして非晶性のビスッタッシュのみを使用した例を比較例1～4に示す。製造方法はいずれも実施例1と同様にして行ない、成分比は表中に示した。

さらに比較例6としてポリアミド系ホットメルト接着剤DIX-650(ヘンケル白水㈱)の

16

特商昭62-81970(6)

表

成 分 ・ 量 ・ (商 品 名)	実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	実施例 5	比較例		比較例		比較例	
						1	2	3	4	5	6
タレインQ-1657	1.5	1.5	1.5	2.0	2.45					3.5	
カーフレックスTR-1107											
EVA EV-420											
EVA A-704											
ポリエチオPX-850											
タイントンC-100	2.8										
YSポリエチ-145	2.8										
アセト P-115				2.8	4.9	3.5	2.6	2.6	2.6	3.5	
ビスコーベ660P	2.8	2.8	2.8	1.5	2.45	3.3	2.6	2.6	2.6	3.3	
ビスコーン											
ビスクコ L	2.8	2.8	2.8	2.8		3.3	2.6	2.6	2.6		
Irgawox-1010	1	1	1	1	2	1	1	1	1	1	

特許第62-31470(7)

表5

		実験例 1	実験例 2	実験例 3	実験例 4	実験例 5	実験例 6	比較例 1	比較例 2	比較例 3	比較例 4	比較例 5	比較例 6	
R&B軟化点	℃	145	142	145	140	145	145	145	146	145	145	145	110	155
溶解粘度	cps-190℃	5000	2500	3000	20000	25000	500	1000	500	500	500	25000	800	
溶 解 度 分 解	分 解	○	○	○	○	○	○	×	×	×	○	○	○	
安定性 試 験	熱 強 度	○	○	○	○	○	○	○	△	○	○	○	×	
繊 維 アリブロ ヒレン 耐熱強度 試験	ヘタリ 強度	23℃	2.0	4.0	10.0	4.0	5.0	~0	0.5	~0	~0	4.0	~0	
	ヘタリ 強度	60℃	1.0	2.0	2.5	2.0	2.0	~0	~0	~0	~0	0.5	~0	
繊 維 アリブロ ヒレン 耐熱強度 試験	ヘタリ 強度	23℃	5.0	3.0	4.5	6.0	5.0	~0	5.0	~0	~0	2.5	~0	
	ヘタリ 強度	60℃	1.0	0	1.0	1.0	2.0	~0	~0	~0	~0	2	~0	
繊 維 アリブロ ヒレン 耐熱強度 試験	クリーブ強度	130℃	120℃	125℃	115℃	120℃	120℃	測定不可	4.0℃	測定不可	測定不可	9.0℃	測定不可	
	ヘタリ 強度	23℃	3.0	7.0	10.0	4.0	6.0	~0	1.0	~0	~0	9.0	0.5	
繊 維 アリブロ ヒレン 耐熱強度 試験	ヘタリ 強度	60℃	1.0	1.0	2.0	1.0	3.0	~0	~0	~0	~0	0.5	~0	
	ヘタリ 強度	23℃	7.0	5.0	4.0	4.5	6.0	~0	6.0	~0	~0	3.0	2.1	
繊 維 アリブロ ヒレン 耐熱強度 試験	ヘタリ 強度	60℃	7	10	10	8	20	~0	~0	~0	~0	5	1.0	
	ヘタリ 強度	120℃	115℃	120℃	115℃	120℃	125℃	測定不可	4.5℃	測定不可	測定不可	6.0℃	1.0℃	

特開昭62-81470(8)

特許結果を次に示す、

IV. 明の効果

本発明の接着剤組成物により、金属はもとより、従来接着が困難とされていたオレフィン系樹脂、特にポリプロピレン樹脂に対する接着性、接着耐熱性に優れ、さらにプロダクトアセンブリーと称するホットメルトアクリケーターによる溶融樹脂接着力において、優れた薄膜安定性を有するホットメルト接着剤を提供でき、それは電気部品、自動車部品、工業用フィルター部品などの接着及びシーリング接着をはじめとする各種産業分野で有効に利用されるという優れた効果を有する。

特許出願人の名称

東亜合成化学工業株式会社

20